

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 燃料電池セルと、この電池セルへ供給される発電用燃料の供給源と、この発電用燃料を循環させる流路と、前記流路に前記発電用燃料の循環流を発生させる循環流発生手段と備え、

前記循環流発生手段は、前記流路に隣接して配置される圧電アクチュエータと、この圧電アクチュエータの制御手段と、を備えて構成される燃料電池装置。

【請求項 2】 前記流路は、前記電池セルに付設され、前記燃料が供給される燃料室と、前記燃料源と前記燃料室との間で前記燃料を循環させる管路と、からなる請求項 1 記載の燃料電池装置。

【請求項 3】 前記圧電アクチュエータが前記燃料室の隔壁に隣接して配置されている請求項 2 記載の燃料電池装置。

【請求項 4】 前記圧電アクチュエータが前記管路に隣接して配置されている請求項 2 又は 3 記載の燃料電池装置。

【請求項 5】 前記燃料室内の前記燃料の循環流を整流する整流手段が設けられてなる請求項 2 乃至 4 のいずれか 1 項記載の燃料電池装置。

【請求項 6】 前記整流手段は、前記燃料の循環流に対する逆流を防止する逆止弁である請求項 5 記載の燃料電池装置。

【請求項 7】 前記整流手段は、流路インピーダンスが互いに異なるように設計された、前記燃料室の前記燃料循環流に対する入口及びその出口である請求項 5 記載の燃料電池装置。

【請求項 8】 前記燃料室は前記燃料電池セルの燃料極に臨む反応室と、前記圧電アクチュエータによって振動される振動室とに区画され、振動室内で発生した燃料循環流が前記反応室に供給されるようにした請求項 2 乃至 7 のいずれか 1 項記載の燃料電池装置。

【請求項 9】 前記制御手段は前記燃料電池セルの発生電圧を検出するセンサと、検出電圧が所定値以下の時に前記圧電アクチュエータに駆動信号を出力する駆動制御回路と、を備えてなる請求項 2 乃至 8 のいずれか 1 項記載の燃料電池装置。

【請求項 10】 メタノール系液体燃料を直接発電用燃料として使用する、請求項 1 乃至 9 のいずれか 1 項記載の燃料電池装置。

【請求項 11】 触媒層に被反応流体を循環供給する流体供給システムにおいて、前記流体の循環用流路に圧電アクチュエータを隣接して前記流路を振動させることにより、前記流体に対する循環応力を得るように構成した流体供給システム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は燃料電池装置に係わり、特に、発電用燃料を燃料電池に供給する構造が改良され、その結果、硬貨のサイズまで小型化可能な燃料電池装置に関するものである。

【0002】

【従来の技術】燃料電池は、アノード（燃料極）、電解質、及びカソード（空気極）が積層されて構成され、アノードに水素を供給しカソードに酸素を供給して、化学反応（アノード： $H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$ 、カソード： $1/2 O_2 + 2H^+ + 2e^- \rightarrow H_2O$ ）の自由エネルギー変化を直接に電気エネルギーとして取り出すものである。燃料電池は、化石燃料を使用しないクリーンエネルギーであるため、二酸化炭素排出量削減に貢献する環境調和型電源として注目されている。

【0003】中でも、電解質に固体電解質膜を用いる固体高分子型燃料電池（PEFC）は、低温での出力が大きいと、小型の家庭用電源、ポータブル電源、移動体用電源としての実用化が検討されている。また、直接メタノール型燃料電池（DMFC）も実用化が検討されている。この型の燃料電池は、水素を取り出すための改質を必要とせず、メタノールやジメチルメタノール等の液体燃料を電池内部で直接利用する。

【0004】これまで、携帯電話等の携帯機器の電源としては、リチウムイオン電池等の二次電池が主流であったが、最近では PEFC や DMFC を携帯機器の電源として用いるための開発がなされている。PEFC や DMFC は、充電が不要であり、燃料を連続供給すれば連続使用が可能であるので、実用化されれば携帯機器の電源の連続使用時間を著しく長くできるようになる。

【0005】図 2 には、燃料電池を備えて成る燃料電池発電システム（燃料電池装置）が示されている。この燃料電池システムは、燃料電池 10 と、メタノールタンク 21 と、メタノールタンク 21 に連通されたミキシングタンク 22 と、ミキシングタンク 22 から小型燃料電池 10 へ導かれた供給チューブ 24a と、供給チューブ 24a に設けられたポンプ 23 と、小型燃料電池 10 からミキシングタンク 22 へ導かれた排出チューブ 24b を備えている。

【0006】メタノールタンク 21 に燃料であるメタノール溶液（例えば、メタノールの 3% 水溶液）を充填し、ポンプ 23 を作動させると、メタノール溶液がミキシングタンク 22、供給チューブ 24a を通じて燃料電池のアノード（燃料極）へ導かれる（矢印 A）。未使用のメタノール溶液や副生物は排出チューブ 24b を通じてミキシングタンク 22 に還流される（矢印 A'）。副生物は、セバレータによって取り除かれる。空気（酸素）は B 及び B' 方向に燃料電池のカソード（酸化極）へ導かれる。これによって得られる小型燃料電池 10 からの出力を、集電部材を通じて取り出す。

【0007】既述のダイレクトメタノール型の固体高分

子燃料電池では、

燃料極： $\text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + 6\text{H} + 6\text{e}^-$

空気極： $3/2\text{O}_2 + 6\text{H}^+ + 6\text{e}^- \rightarrow 3\text{H}_2\text{O}$

の反応が起こり、必要な起電力が得られる。

【0008】アノードで既述の反応が進むと、アノード近傍に一酸化炭素、ホルムアルデヒド、蟻酸、又は未反応物質（水、その他の不純物）が滞留し、反応効率が低下する。そこで、既述のようにメタノールをアノードに循環させて燃料を新鮮なものとし、化学反応速度が低下しないようにしている。

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、既述の燃料電池装置では、メタノールをアノードに供給するためにポンプを併設しなければならず、燃料電池を小型化する上で問題があった。また、小型燃料電池の分野において、ポンプに代わる燃料循環手段は何ら提案されていない。またさらに、従来の燃料電池発電システムでは、アノードに十分メタノール燃料を供給できない問題があった。そこで、本発明は、燃料電池の小型化に適した燃料循環機構を備えた燃料電池装置を提供することを目的とするものである。本発明の他の目的は、ポンプに代わる新規な燃料循環手段を備えた小型燃料電池装置を提供することにある。本発明の更に他の目的は、燃料循環手段の制御特性に優れた小型燃料電池装置を提供することにある。本発明の更に他の目的は、循環燃料の逆流防止機能を備えた小型燃料電池装置を提供することにある。本発明の更に他の目的は、燃料極に十分メタノール系燃料が十分供給される小型燃料電池装置を提供することにある。

【0009】

【課題を解決するための手段】本発明者は、振動手段の一つである圧電体アクチュエータを利用した流体制御技術を用いて既述の目的を達成することができるという知見を得るに至った。即ち、本発明は、燃料電池セルと、この電池セルへ供給される発電用燃料の供給源と、この発電用燃料を循環させる流路と、前記流路に前記発電用燃料の循環流を発生させる循環流発生手段と備え、前記循環流発生手段は、前記流路に隣接して配置される圧電アクチュエータと、この圧電アクチュエータの制御手段と、を備えて構成される燃料電池装置であることを特徴とする。

【0010】本発明の好適な形態において、前記流路は、前記電池セルに付設され、前記燃料が供給される燃料室と、前記燃料源と前記燃料室との間で前記燃料を循環させる管路と、からなる。

【0011】前記圧電アクチュエータは、前記燃料室の隔壁に隣接して配置されている。また、前記圧電アクチュエータは、前記管路に隣接して配置されている。前記燃料室内の前記燃料の循環流を整流する整流手段が設けられている。

【0012】前記整流手段は、前記燃料の循環流に対す

る逆流を防止する逆止弁である。前記整流手段は、流路インピーダンスが互いに異なるように設計された、前記燃料室の前記燃料循環流に対する入口及びその出口である。前記燃料室は前記燃料電池セルの燃料極に臨む反応室と、前記圧電アクチュエータによって振動される振動室とに区画され、振動室内で発生した燃料循環流が前記反応室に供給されるようにした。

【0013】前記制御手段は前記燃料電池セルの発生電圧を検出するセンサと、検出電圧が所定値以下の時に前記圧電アクチュエータに駆動信号を出力する駆動制御回路と、を備えてなる。メタノール系液体燃料が直接発電用燃料として使用される。

【0014】本発明は、また、触媒層に被反応流体を循環供給する流体供給システムにおいて、前記流体の循環用流路に圧電体アクチュエータを隣接して前記流路を振動させることにより、前記流体に対する循環応力を得るように構成したことを特徴とする。

【0015】

【発明の実施の形態】図1には本発明の第1の実施形態に係わる燃料電池装置が示されている。符号30は燃料極であり、符号32は燃料拡散層であり、符号34は空気極であり、符号36は空気拡散層である。符号38はプロトンのみ伝導させる固体電解質である。これらの各構成部分を組み合わせて燃料電池セル1が構成される。

【0016】符号40は燃料拡散層に付設された燃料室である。符号42は燃料室の隔壁を示す。燃料室にはメタノールがメタノールタンク（燃料源）21から循環供給される。符号44はそれぞれ陽極端子又は陰極端子を示す。前記固体電解質膜は、例えば、ナフィオン膜（デュポン社商標名）からなり、アノードは、例えば、白金（Pt）及びルテニウム（Ru）の合金を担持したカーボン触媒電極膜からなり、カソードは、例えば、白金（Pt）を担持したカーボン触媒電極膜からなる。燃料拡散層32はメッシュの金属フォーム（例えば、スチールウール等）からなる多孔性膜であり、燃料室40へ導かれたメタノール溶液は、燃料拡散層32内を拡散してアノード30へ導かれる。アノード30において、メタノールはプロトンに変換（改質）される。一方、空気拡散層36もメッシュの金属フォーム（例えば、スチールウール等）からなる多孔性膜であり、空気（酸素）が図2のB及びB'方向に空気拡散層内を拡散して、カソード34へ導かれる。燃料拡散層32及び空気拡散層36は、それぞれ、Al、SUSなどであってもよく、また、スポンジチタン等の多孔性金属材料、カーボンペーパー紙にカーボンを担持したもの、カーボクロス等であってもよい。カーボンペーパー紙にカーボンを担持したものやカーボクロスを用いる場合には、燃料拡散層及び集電部材の双方の機能を持たせることができる。図2の燃料が供給されるチューブ24a（管路）及び/又は前記燃料室42が本発明の燃料循環流が通過する流路

を構成する。符号50は図2のポンプに代えて設けられた、燃料循環流発生手段としての圧電アクチュエータである。この圧電アクチュエータは前記燃料室の隔壁に隣接して、かつ隔壁に付着して設けられている。圧電アクチュエータは圧電セラミックス52と圧電セラミックス両端に設けられた一対の電極54、56と、この電極に印加される電圧制御手段（圧電体アクチュエータ制御手段）58とから構成される。圧電セラミックスの電極54、56に電圧を印加すると、圧電セラミックス（PZT）52が伸縮変形する。隔壁42にはこのような変形は無いので、変形による応力差から、圧電アクチュエータが付設された隔壁42が燃料極側に撓む（42a）。その時、燃料室40内のキャビティは負圧となる。

【0017】符号60は燃料循環流を前記燃料室40内に供給するノズルであり、符号62は燃料循環流を燃料室40から排出するためのノズルである。これら各ノズルには燃料循環流を矢印の方向に形成するために、燃料循環流をこの矢印とは反対方向にならないようにする逆流防止弁61a、61bが設けられている。

【0018】圧電アクチュエータに通電されると、既述のように燃料室40の隔壁42aが燃料極30側に撓み、その結果出口ノズル62から燃料室40内のメタノールが排出される。この時、逆流防止弁61aの影響によって入口ノズル60からメタノールが燃料室40外に排出されることはない。

【0019】次いで、圧電アクチュエータの印加電圧を開放されるか、逆極性の電圧が印加されると、既述の応力が開放されて隔壁42が元の位置に戻ろうとする。この過程において、燃料室40の隔壁が元の位置に戻る動作に同期して、新鮮な燃料が入口ノズル60から燃料室内に供給される。この時出口ノズル62から燃料室40内に向けてメタノールが逆流することは弁61bの作用によってない。

【0020】このように圧電アクチュエータに通電を繰り返すことによってキャビティ隔壁42を振動させることにより、既述のポンプと同じように、燃料循環流を発生させるための応力を得ることができる。圧電アクチュエータは燃料室40のキャビティ隔壁42に隣接して設けているために、ポンプを設置するための空間を必要としない。よって、燃料電池装置を小型化する上で好適である。また、圧電アクチュエータを微細パターンニング技術を用いて隔壁に直接形成することができる図3は、圧電アクチュエータの駆動波形と液体燃料の流量との関係を示す特性図である。（1）は圧電セラミックスの駆動波形（印加電圧）の時間変化特性であり、（2）は燃料循環流の時間変化の特性であり、（3）は燃料拡散層内の燃料流量の時間変化の特性図であり、（4）は燃料室内キャビティを流れる燃料流量の時間変化特性である。これら各特性は圧電セラミックスの駆動波形の時間変

化に同期して変化する。したがって、圧電セラミックスの歪変化が従来のポンプの特性に代わることが可能となる。なお、これら特性図において破線部分は液流の逆流を表しているが、既述のとおり逆流防止弁が設けられているのでこの逆流は防止される。

【0021】次に本発明の他の実施形態を図4に基づいて説明する。この実施形態が図1の実施例と異なる部分は、後者ではノズルに逆止弁が設けられているのに対して、前者では、二つのノズルの流路インピーダンス（抵抗）に差を設け、この差によって、図4の矢印方向の燃料循環流（定常流）を発生させるようにしている点である。すなわち、燃料室40の入口60と出口62の流路抵抗を異なるようにすると、燃料室の入側と出側においてそれぞれ圧電セラミックスの振動周波数に対する特性が異なるようにできる。

【0022】例えば、圧電セラミックスが緩慢に撓んだときに燃料を吸い易く、撓んだ圧電セラミックスが素早く元に戻ったときに吸い込んだ燃料が逆流しない特性（流路インピーダンス）を持ったノズルを入口或いは出口に設け、他方の口にこれとは逆の特性を持ったノズルを配置する。ノズルの流路インピーダンスは、ノズルの断面積、ノズルの材質、ノズル先端の硬さ、ノズルの長さ等によって適宜設定できる。

【0023】圧電セラミックスの伸縮、すなわち隔壁を振動させるためには、既述のように電極に加えられる電圧を制御すればよい。電極に正の電圧を印加すると圧電セラミックスは伸び、電極に分極反転以下の負の電圧を印加すると圧電セラミックスは縮む。電極に印加される直流電界（ kV/cm ）を制御することによって、既述のように、歪（ $\Delta L/L$ ：Lは圧電体セラミックスの長さ、 ΔL はその変化量）の時間当たりの変化率を変えることができる。圧電セラミックスの振動により一定方向の液流が発生する。

【0024】図5は第3の実施形態を示すものであり、既述の実施形態と異なる点は、燃料室40を振動室40Aと反応室40Bに分画する点である。振動室40Aとは圧電体アクチュエータによって振動する領域である。反応室40Bとは燃料拡散層32に隣接し、燃料を燃料拡散層32に送り込むための領域である。

【0025】振動室と反応室とは分画壁41によって仕切られており、後者の体積は前者に比べて顕著に小さくなるように設定されている。

【0026】このように構成したのは次の理由からである。拡散層32内への燃料を供給する上での流れ抵抗は大きいために、燃料室30に供給された燃料は電池セルの拡散層32内に至ることなく、燃料室40を通過するだけのおそれがあった。そこで、燃料室40内に反応室40Bを設け、反応室40Bの体積を少なくし、かつ、振動室40Aで発生した液流を反応室に流れるようにして、すなわち振動室40Aと反応室40Bとを液流に対

10

20

30

40

50

して直列に配置して、反応室40B内の流路圧を高めるようにする。液流は振動室40Aから入り、反応室40Bから排出される。このようにすることによって、反応室内の燃料がアノードにまで到達し易くなる。

【0027】図6は本発明の更に他の実施形態を示すものである。既述の実施形態においては、圧電体アクチュエータを、発電用燃料を循環させる流路を成す、燃料室に隣接して設けていたが、この実施形態では、燃料室に燃料を供給する管路80に隣接して圧電アクチュエータを設けた点が既述の実施形態とは異なる。

【0028】この管路80の途中には複数の圧電体アクチュエータ50A乃至50Eが並列して配置され、この圧電体アクチュエータの先端に管路80に衝突する飛翔体82A乃至82Eがそれぞれ配設されている。

【0029】図7はこの実施形態に使用される圧電アクチュエータの詳細図であって、二つの電極54、56がそれぞれ歯状に形成されて互いに交差している。これら電極間には圧電セラミックス52が配置されている。符合90は圧電体アクチュエータの基端部を固定する固定板である。符合82Aは圧電体アクチュエータの先端に配置された板状の金属部材（飛翔体）であって、圧電セラミックスが瞬間的に伸びる方向の歪みとなる変形を行うと、変形の応力が飛翔体82Aに伝達される。飛翔体82Aは管路80の壁面に接触して配置されている。

【0030】図8（1）に示すように、圧電体アクチュエータ50Aを瞬間的に歪ませると、飛翔体82Aは管路80の径方向に打ち出され、管路が一時的に変形される。図8（2）に示すように、この後、飛翔体82Aは元の位置に復帰して管路80の変形は解消される。複数の圧電体アクチュエータ50A乃至50Eを管路に沿って並列に配置し、各アクチュエータに供給される電圧の印加タイミングを制御して、管路内の燃料に進行波を形成させる。燃料流の進行方向を図6の矢印のように形成することによって燃料室40に燃料を循環して供給することができる。

【0031】図9は管路80内に燃料の進行波を形成する過程を示す、圧電体アクチュエータの動作タイミング図であり、例えば、4つ並列に管路に対して配置されている圧電体アクチュエータの両端のアクチュエータに通電して、管路を両側から変形させ（（1）→（2））、次いで、左側のアクチュエータから順番に飛翔体82D→82Aを管路80に対して打ち出す（（3）→（4））。こうすることによって、変形された管路の二つの部分の間にある容積の燃料100に圧電セラミックスの変形を応力を伝達して、矢印に示す方向を持った液流を作り出すことが可能となる。

【0032】次に既述のアクチュエータ駆動制御手段58の詳細について説明する。この制御手段は、図10に示すように、燃料電池セルの電圧検出回路58Aと、検

出電圧値と所定の電圧値とを比較するとともに、検出電圧値が所定の電圧値以下となったときにアクチュエータ駆動制御信号を発生する比較回路58Bと、駆動制御信号を受けて前記電極に電圧信号（アクチュエータ駆動信号）を出力する出力制御回路58Cとから構成される。電圧値の変化率を変えることによって、圧電セラミックスの伸縮の変化率を制御することが可能となる。

【0033】このように構成することによって、燃料極での電気化学反応速度の低下を検出し、燃料室にメタノール系燃料を直ちに供給することができるために、電気化学反応速度の低下を防ぎ、安定した発電能力を維持することが可能である。

【0034】以上説明した実施形態においては、循環流発生手段を燃料電池の燃料室或いは管路に適用する場合について説明したが、メタノール系燃料を水素に改質させた後使用するタイプの燃料電池において、この水素改質器へのメタノール系燃料を供給することに圧電アクチュエータによる循環流を形成するようにしても良い。

【0035】

【発明の効果】以上説明したように、本発明によれば、圧電アクチュエータを燃料電池セルに供給される発電燃料の循環流発生手段としたために、従来のポンプ機構を省くことができ、その結果、小型化に適した燃料電池装置を提供することができる。さらに本発明によれば、ポンプに代わる新規な燃料循環手段を備えた小型燃料電池装置を提供することができる。さらに本発明によれば、燃料循環手段の制御特性に優れた小型燃料電池装置を提供することができる。さらに本発明によれば、循環燃料の逆流防止機能を備えた小型燃料電池装置を提供することができる。さらに本発明によれば、燃料極に十分メタノール系燃料が十分供給される小型燃料電池装置を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の第1の実施形態に係わる燃料電池装置の構成図である。

【図2】 燃料電池発電システム図である。

【図3】 圧電アクチュエータの駆動特性と液流との関係を示すグラフである。

【図4】 本発明の第2実施形態に係わる燃料電池装置の構成図である。

【図5】 本発明の第3の実施形態に係わる燃料電池装置の構成図である。

【図6】 本発明の第4の実施形態に係わる燃料電池装置の構成図である。

【図7】 図6の実施例に係わる圧電アクチュエータの詳細説明図である。

【図8】 この圧電アクチュエータの動作説明図である。

【図9】 この圧電アクチュエータの動作タイミング図である。

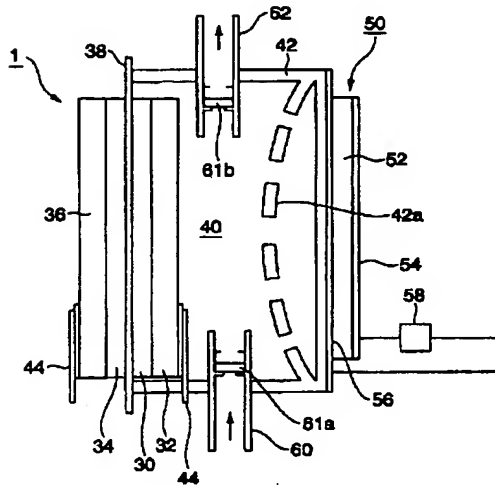
【図10】 アクチュエータ駆動制御手段の詳細ブロック図である。

【符号の説明】

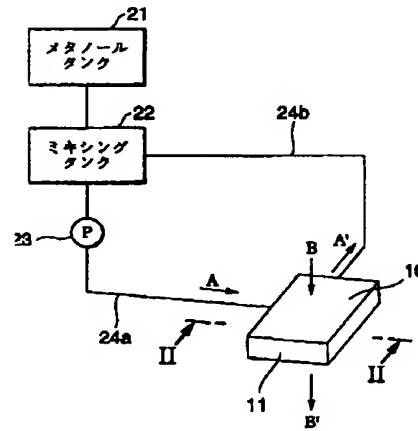
1：燃料電池セル、10：燃料電池、21：メタノールタンク、22：ミキシングタンク、24a：燃料供給チ

ューブ24a、23：ポンプ、24b：燃料排出チューブ、30：燃料極、32：燃料拡散層、34：空気極、36：空気拡散層、38：プロトンのみ伝導させる固体電解質、40：燃料室、42：燃料室の隔壁、50：圧電アクチュエータ

【図1】

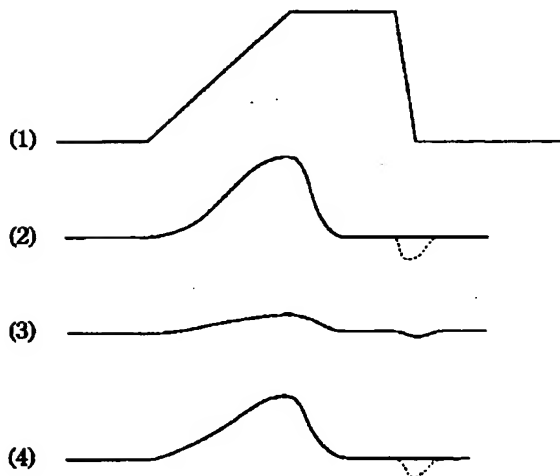


【図2】

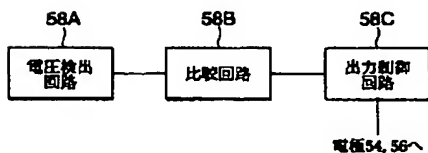


【図4】

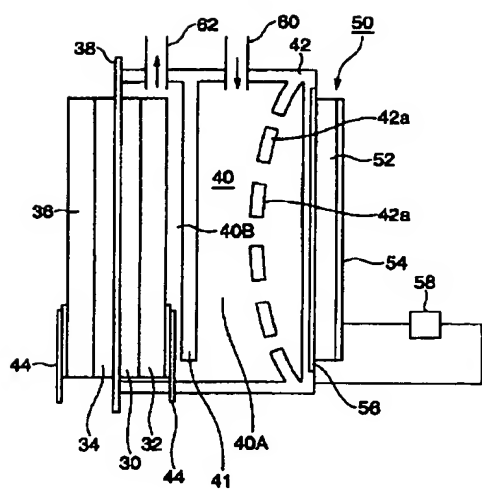
【図3】



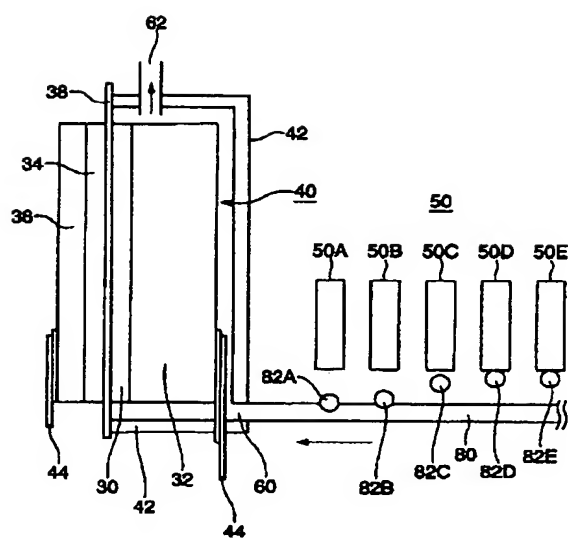
【図10】



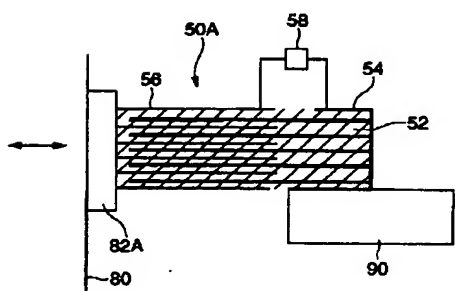
【図5】



【図6】

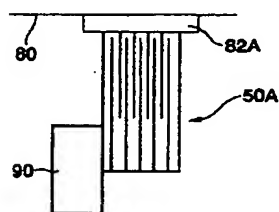


【図7】

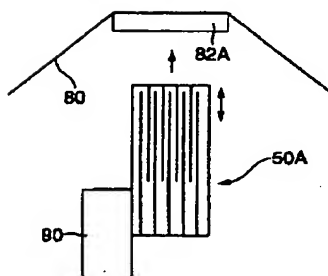


【図8】

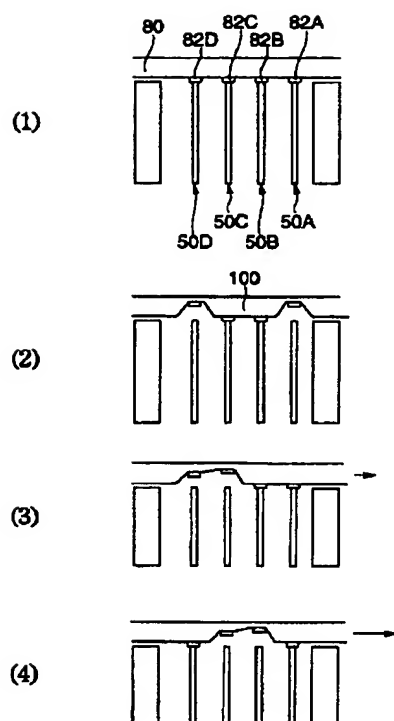
(1)



(2)



【図9】



フロントページの続き

(72)発明者 笠原 幸雄
 長野県諏訪市大和3丁目3番5号 セイコ
 ーエブソン株式会社内

F ターム(参考) 5D107 AA12 AA13 BB06 CC02 CC10
 CC12 CD08 DD11
 5H027 AA08 KK11 KK51 MM09

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.